

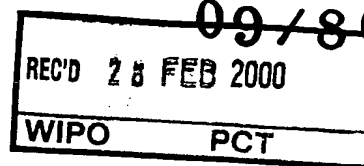
**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

EP 99/9971



EJU



09/868093

## Bescheinigung

Die BASF Aktiengesellschaft in Ludwigshafen/Deutschland hat eine Patentanmeldung unter der Bezeichnung

"Reaktormodul mit einem Kontaktrohrbündel"

am 15. Dezember 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig die Symbole B 01 J, F 28 D und C 07 C der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 11. Januar 2000

**Deutsches Patent- und Markenamt**

**Der Präsident**

Im Auftrag

Brand

Aktenzeichen: 198 57 842.3





BASF Aktiengesellschaft

15. Dezember 1998  
NAE19980463 IB/HK/bl004

5

---

**Reaktormodul mit einem Kontaktrohrbündel**

---

10

Die Erfindung betrifft ein Reaktormodul mit einem Kontaktrohrbündel, einen Reaktor, aufgebaut aus zwei oder mehreren aneinandergereihten Reaktormodulen sowie eine Verwendung eines Reaktormoduls oder eines Reaktors zur Durchführung von Oxidationsreaktionen.

15

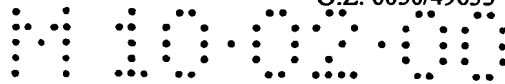
Die übliche Bauart gattungsgemäßer Reaktoren besteht aus einem, in der Regel zylinderförmigen Behälter, in dem ein Bündel, d.h. eine Vielzahl von Kontaktrohren in üblicherweise vertikaler Anordnung untergebracht ist. Diese Kontaktrohre, die gegebenenfalls geträgerte Katalysatoren enthalten können, sind mit ihren Enden in Rohrböden abdichtend befestigt und münden in jeweils eine am oberen bzw. am unteren Ende mit dem Behälter verbundene Haube. Über diese Hauben wird das die Kontaktrohre durchströmende Reaktionsgemisch zu- bzw. abgeführt. Durch den die Kontaktrohre umgebenden Raum wird ein Wärmetauschkreislauf geleitet, um die Wärmebilanz, insbesondere bei Reaktionen mit starker Wärmetönung, auszugleichen.

25

30

Aus wirtschaftlichen Gründen werden Reaktoren mit einer möglichst großen Zahl von Kontaktrohren eingesetzt, wobei die Zahl der untergebrachten Kontaktrohre häufig im Bereich von 10000 bis 40000 liegt (vgl. DE-A-44 31 949).

Damit ist eine technische Obergrenze des Reaktordurchmessers und somit der Rohranzahl hinsichtlich Fertigung, Transport, Montage und Reaktionstechnik,



insbesondere Gleichverteilung des Kühlmittels, erreicht. Da das in der Regel gasförmige Reaktionsgemisch üblicherweise unter Druck steht, haben sich für die den Gasraum begrenzenden Hauben am unteren und insbesondere oberen Ende des Behälters halbrunde Formen durchgesetzt. Für diese Haubenformen ist ein  
5 zylindrischer Aufbau des Reaktors Voraussetzung.

Die zylindrische Reaktorgeometrie bringt den Nachteil mit sich, daß insbesondere bei dem technologisch besonders vorteilhaften Querstrom des Wärmetauschmittels zu den Kontaktrohren von einem Bereich außerhalb der Kontaktrohre zum  
10 kontaktrohrfreien Innenraum des Reaktors es die radial nach innen stark abnehmende Querschnittsfläche nicht erlaubt, den vollen Kühlmittelstrom bis ins Innere des Kontaktrohrbündels zu führen. Vielmehr muß über Bohrungen in den Umlenkplatten Kühlmittel axial abgeführt werden, um den Druckverlust und somit die Pumpenleistung in akzeptablen Grenzen zu halten.

15 Demgegenüber ist es Aufgabe der Erfindung, einen konstanten Wärmetauschmittelstrom über den Reaktorquerschnitt zu ermöglichen.

In einer Ausgestaltung ist es Aufgabe der Erfindung, einen Reaktor zur Verfügung  
20 zu stellen, dessen Kapazität an die Anforderungen des Einzelfalls angepaßt werden kann.

Die Lösung geht aus von einem Reaktormodul mit einem Kontaktrohrbündel, durch dessen die Kontaktrohre umgebenden Raum ein Wärmetauschmittelkreislauf geleitet  
25 wird mit Zu- bzw. Abführleitungen an beiden Enden des Reaktormoduls mit Mantelöffnungen für die Zu- bzw. Abführung eines Wärmetauschmittels im Querstrom zu den Kontaktrohren mittels einer oder mehrerer Pumpen, gegebenenfalls unter Überleitung des Wärmetauschmittels oder eines Teilstroms des Wärmetauschmittels über einen oder mehrere außenliegende Wärmetauscher, wobei  
30 das Wärmetauschmittel der unteren Leitung zugeführt und über die obere Leitung

zur (zu den) Pumpe(n) zurückgeführt wird. Die Lösung ist dann dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktormodul einen rechteckigen Querschnitt aufweist.

- Es wurde gefunden, daß einen unter Druck stehenden Gasraum begrenzende Hauben  
5 auch in halbzyklindrischer Geometrie ausgebildet werden können, wie sie zur beidseitigen Begrenzung eines Behälters mit rechteckigem Querschnitt notwendig ist.

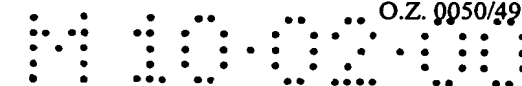
- In bevorzugter Weise sind im Reaktorraum an zwei gegenüberliegenden, zu den  
10 Kontaktrohren parallelen Reaktorseitenflächen kontaktrohrfreie Räume angeordnet, die sich bevorzugt über die gesamte Reaktorhöhe erstrecken, sowie eine oder mehrere Umlenkplatten, die in den kontaktrohrfreien Räumen alternierend Durchschnittsquerschnitte freilassen. Durch diese Ausgestaltung kann der Wärmetauschnittelstrom gleichmäßig, in gewünschter Weise, um die Kontaktrohre  
15 geführt werden.

Die kontaktrohrfreien Räume sind bevorzugt an den beiden breiten Reaktorseitenflächen angeordnet.

- 20 Bezüglich der relativen Abmessungen von Länge zur Breite des Reaktormoduls ist ein Verhältnis von 1:1 bis 10:1 vorteilhaft, bevorzugt von 3:1 bis 6:1, besonders bevorzugt von 5:1. Für die Reaktorhöhe sind relative Werte von 1,5 m bis 7 m bevorzugt.

- 25 Bevorzugt ist eine ungerade Anzahl von Umlenkplatten vorgesehen; dadurch erfolgt die Zu- und Abführung des Wärmetauschnittels auf der selben Seite des Reaktormoduls. Besonders bevorzugt sind 1, 3 oder 5 Umlenkplatten vorgesehen.

- Vorteilhaft ist es, die Pumpe(n) sowie gegebenenfalls den(die) außenliegende(n)  
30 Wärmetauscher auf derselben, bevorzugt breiten, Seite des Reaktormoduls anzuordnen. Damit wird eine besonders raumsparende Anordnung erreicht.



Durch den jeweiligen Reaktionsverlauf können unterschiedliche Wärmeprofile gefordert sein; eine Anpassung an die Anforderungen des Einzelfalls ist dadurch möglich, daß der Wärmetauschmittelstrom mittels einem oder mehreren Bypässen durch die Umlenkplatten in deren rohrfreien Bereichen, mit festen oder regelbaren Durchtrittsöffnungen, angepaßt wird.

Eine besonders bevorzugte Ausführungsvariante ist ein Reaktormodul mit Zwischenwänden in den Zu- und Abführleitungen, die in der Zuführleitung jeweils eine untere äußere Vorkammer und eine untere innere Vorkammer sowie in der Abführleitung eine obere äußere Vorkammer und eine obere innere Vorkammer ausbilden. Das Wärmetauschmittel wird der unteren äußeren Vorkammer, über einen Bereich zwischen Zuleitung und Abführleitung der oberen inneren Vorkammer, über deren Mantelöffnung dem die Kontaktröhre umgebenden Reaktorraum, anschließend über eine Mantelöffnung der unteren inneren Vorkammer, über den Bereich zwischen Zu- und Abführleitung der oberen äußeren Vorkammer und schließlich über die Abführleitung zur (zu den) Pumpe(n) zurückgeführt. Dadurch wird, ohne Veränderung der üblichen Pumpenanordnung, die besonders günstige Gleichstromführung von Wärmetauschmittel und Reaktionsgemisch ermöglicht.

Eine Anpassung an das jeweils geforderte Temperaturprofil kann im Falle von Reaktoren mit Gleichstromfahrweise durch eine an der dem kontaktröhrfreien Raum zugeordneten breiten Reaktorseite anliegenden Außenkammer mit Öffnungen zu dem das Kontaktröhrbündel umgebenden Reaktorraum sowie mit festen oder regelbaren Durchtrittsöffnungen für das Wärmetauschmittel in der Außenkammer erreicht werden.

Eine besonders vorteilhafte Ausführungsform sieht eine Rohrteilung vor, wonach die Kontaktröhre des Kontaktröhrbündels in gegeneinander versetzten Reihen angeordnet sind, wobei das Verhältnis des Rohrabstands  $s_q$  quer zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschmittel zum Rohrabstand  $s_l$  längs zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschmittel vorzugsweise größer oder gleich als  $2 \cdot \sqrt{3}$ , besonders

bevorzugt gleich  $2 \cdot \sqrt{3}$ . Eine derartige Rohranordnung setzt dem anströmenden Wärmetauschnittel einen geringeren Widerstand entgegen; entsprechend ist der Druckverlust bei gleichzeitig höherer Wärmeübergangszahl geringer.

5 Gegenstand der Erfindung ist auch ein Reaktor, der aus zwei oder mehreren, in Richtung der Kontaktrohrlängsachsen, an den schmalen Seitenflächen, aneinander gereihten Reaktormodulen aufgebaut ist. Derartige Reaktoren kennzeichnen sich durch eine flexible Kapazität, die an die konkreten Anforderungen angepaßt werden können. Durch Aneinanderreihen an den schmalen Seitenflächen der Reaktormodule  
10 können die den Gasraum abschließenden halbzyklindrischen Hauben eine deren ebenen Seitenflächen, die entsprechend mit Durchtrittsöffnungen versehen werden, verlängert werden. Eine Obergrenze für die Kapazität von Reaktoren ist damit aufgehoben.

15 Das erfindungsgemäße Reaktormodul oder der erfindungsgemäße Reaktor sind besonders zur Durchführung von Oxidationsreaktoren, insbesondere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Malleinsäureanhydrid, Glyoxal, (Meth)acrolein oder (Meth)acrylsäure geeignet.

20 Die Erfindung wird im folgenden anhand von Ausführungsbeispielen und einer Zeichnung näher erläutert. Es zeigen im einzelnen:

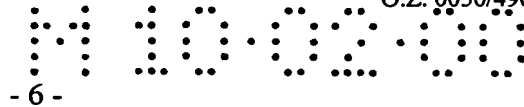
Figur 1 eine schematische Darstellung eines Reaktormoduls gemäß der Erfindung,

25

Figur 2 einen Längsschnitt durch ein Reaktormodul gemäß der Erfindung,

Figur 3 einen Längsschnitt durch eine bevorzugte Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Reaktormoduls,

30



- 6 -

Figur 4 einen Längsschnitt durch eine weitere bevorzugte Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Reaktormoduls,

Figur 5 eine bevorzugte Anordnung der Kontaktrohre und

5

Figur 6 einen beispielhaft aus drei Reaktormodulen aufgebauten Reaktor.

Figur 1 zeigt ein Reaktormodul 1 mit rechteckigem Querschnitt mit einem vertikalen Kontaktrohrbündel 2, mit Zuführleitung 3 und Abführleitung 4 für das Wärmetauschnittel sowie mit Mantelöffnungen 5, 6 zum Reaktormodul 1. An den einander gegenüber liegenden breiten Seitenflächen des Reaktormoduls sind kontaktrohrfreie Räume 7, 8 zum Verteilen bzw. Sammeln des Wärmetauschnittels vorgesehen. Die Umlenkplatten 9 bewirken eine mäanderförmige Führung des Wärmetauschnittels. Das Gas oder Gasgemisch G wird in den Gas-Eintrittsraum 21 eingeleitet, durchströmt die Kontaktrohre 2 und wird anschließend über den Gas-Austrittssammler 22 abgeleitet. Pumpen P und Wärmetauscher W sind auf der selben breiten Seite des Reaktormoduls 1 angeordnet.

In der in Figur 2 im Längsschnitt dargestellten besonderen Ausführungsform sind zusätzlich in den Umlenkplatten 9, in deren kontaktrohrfreien Bereichen, Bypässe für den Wärmetauschnittelstrom dargestellt, die regelbare Durchtrittsöffnungen 10 oder feste Durchtrittsöffnungen 11 für das Wärmetauschnittel freigeben.

Figur 3 zeigt einen Längsschnitt durch eine bevorzugte Ausführungsvariante, mit Gleichstromführung von Wärmetauschnittel und Gasgemisch G. Dazu sind mittels Zwischenwänden 12 in der Zu- und Abführleitung 3, 4 jeweils eine untere äußere Vorkammer 13, eine untere innere Vorkammer 14 sowie eine obere äußere Vorkammer 15 und eine obere innere Vorkammer 16 ausgebildet. Das Wärmetauschnittel wird danach aus der Zuleitung 3 in die untere äußere Vorkammer 13, über einen Bereich zwischen Zu- und Ableitung 3, 4 der oberen inneren Vorkammer

30

16, über die Mantelöffnung 5 dem die Kontaktrohre umgebenden Raum zugeführt und anschließend über die Mantelöffnung 6, die untere innere Vorkammer 14, einen Bereich zwischen Zu- und Ableitung 3, 4 und die obere äußere Vorkammer 15 zur (zu den) Pumpe(n) abgeführt. Bevorzugt kann an den geteilten Vorkammern 13 bis 5 16 gegenüberliegenden breiten Reaktorausenseite eine Außenkammer 17 angeordnet sein, mit Öffnungen 18, 19 zum Reaktormodul, bzw. zum kontaktrohrfreien Raum 8. Über die Außenkammer 17 kann ein Teil des Wärmetauschnittelstroms kurzgeschlossen werden, wobei der Wärmetauschnittelstrom über feste oder regelbare Durchtrittsöffnungen 20 eingestellt werden kann.

10

In der in Figur 4 im Längsschnitt dargestellten besonderen Ausführungsvariante sind an der(den) Pumpe(n) gegenüber liegenden breiten Seite des Reaktormoduls 1 ein oder mehrere Wärmetauscher W angeordnet, über die Teilströme des Wärmetauschnittels aus dem kontaktrohrfreien Raum 8 geleitet werden.

15

Figur 5 zeigt einen Querschnitt durch ein Reaktormodul mit besonders günstiger Rohranordnung. Danach sind die Rohre in gegeneinander versetzten Reihen angeordnet, wobei der Rohrabstand  $s_q$  quer zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschnittel zum Rohrabstand  $s_l$  längs zur Anströmrichtung durch das 20 Wärmedurchmittel zueinander im Verhältnis  $2 \cdot \sqrt{3}$  stehen. Entsprechend ist dann der Rohrabstand  $s_d$  diagonal zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschnittel kleiner als der Rohrabstand  $s_q$ .

25

Figur 6 zeigt beispielhaft einen durch Aneinanderreihen von drei Reaktormodulen 1 aufgebauten Reaktor. In platzsparender Weise sind alle Pumpen P und Wärmetauscher W auf der selben Seite der Reaktormodule angeordnet.

30

Durch die Erfindung wird ein konstanter Wärmetauschnittelstrom über den Reaktorquerschnitt gewährleistet. Dadurch wird eine gleichmäßige Wärmeübergangszahl zum die Kontaktrohre durchströmenden Reaktionsgemisch und somit eine vorteilhafte Reaktionsführung erreicht.



H 10 02 00  
- 8 -

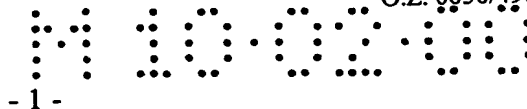
Durch die erfindungsgemäße Bauform wird der Druckverlust um bis zur Hälfte gegenüber konventionellen Bauformen reduziert. Dadurch wird die Wirtschaftlichkeit verbessert, da niedrigere Pumpenleistungen bzw. höhere Wärmetauschtelumwälzmengen möglich sind.

5

Eine weitere Reduzierung des Druckverlustes wird durch die besonders günstige, versetzte Rohrteilung, mit engstem Querschnitt in der Diagonalen zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschtittel, erreicht.

10

Ein weiterer Vorteil der erfindungsgemäßen Vorrichtung ist deren modularer Aufbau, das heißt, daß Reaktoren mit beliebiger Kapazität durch Aneinanderreihen einer entsprechenden Anzahl von Reaktormodulen zur Verfügung gestellt werden können.



BASF Aktiengesellschaft

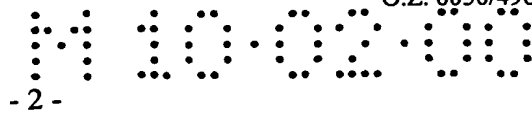
15. Dezember 1998  
NAE19980463 IB/HK/bl/004

5

**Patentansprüche**

1. Reaktormodul (1) mit einem Kontaktrohrbündel (2), durch dessen die Kontaktrohre umgebenden Raum ein Wärmetauschkreislauf geleitet wird mit Zu- bzw. Abführleitungen (3, 4) an beiden Enden des Reaktormoduls mit Mantelöffnungen (5,6) für die Zu- bzw. Abführung eines Wärmetauschmittels im Querstrom zu den Kontaktrohren mittels einer oder mehrerer Pumpen (P), gegebenenfalls unter Überleitung des Wärmetauschmittels oder eines Teilstroms des Wärmetauschmittels über einen oder mehrere außenliegende Wärmetauscher (W) wobei das Wärmetauschkreislaufmittel der unteren Leitung (3) zugeführt und über die obere Leitung (4) zur (zu den) Pumpe(n) (P) zurückgeführt wird, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktormodul (1) einen rechteckigen Querschnitt aufweist.
2. Reaktormodul (1) nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch im Reaktorraum an zwei gegenüberliegenden, zu den Kontaktrohren parallelen Reaktorseitenflächen angeordneten kontaktrohrfreien Räumen (7,8), die sich bevorzugt über die gesamte Reaktorhöhe erstrecken, sowie durch eine oder mehrere Umlenkplatten (9), die in den Räumen (7,8) alternierend Durchtrittsquerschnitte freilassen.
3. Reaktormodul nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die kontaktrohrfreien Räume (7, 8) an den beiden breiten Reaktorseitenflächen angeordnet sind.

30



- 2 -

4. Reaktormodul (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 3, gekennzeichnet durch ein Verhältnis von Länge zu Breite von 1:1 bis 10:1, bevorzugt von 3:1 bis 6:1, besonders bevorzugt von 5:1.
5. Reaktormodul (1) nach einem der Ansprüche 2 bis 4, gekennzeichnet durch eine ungerade Anzahl von Umlenkplatten (9), bevorzugt 1, 3 oder 5 Umlenkplatten (9).
6. Reaktormodul (1) nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Pumpe(n) sowie gegebenenfalls der (die) außenliegende(n) Wärmetauscher auf derselben, bevorzugt breiten, Seite des Reaktormoduls (1) angeordnet sind.
7. Reaktormodul (1) nach einem der Ansprüche 2 bis 6, gekennzeichnet durch einen oder mehrere Bypässe mit festen (11) oder regelbaren (10) Durchtrittsöffnungen, durch die Umlenkplatten (9), in deren rohrfreien Bereichen.
8. Reaktormodul (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß in den Zu- und Abführleitungen (3, 4) Zwischenwände (12) vorgesehen sind, die in der Zuführleitung (3) jeweils eine untere äußere Vorkammer (13) und eine untere innere Vorkammer (14) sowie in der Abführleitung (4) eine obere äußere Vorkammer (15) und eine obere innere Vorkammer (16) ausbilden, und daß das Wärmetauschkittel der unteren äußeren Vorkammer (13), über einen Bereich zwischen Zuleitung (3) und Abführleitung (4) der oberen inneren Vorkammer (16), über deren Mantelöffnung (6) dem die Kontaktrohre (2) umgebenden Reaktorraum, anschließend über die Mantelöffnung (5) der unteren inneren Vorkammer (14), über den Bereich zwischen Zu- und Abführleitung (3, 4) der oberen äußeren Vorkammer (15) und schließlich über die Abführleitung (4) zur (zu den) Pumpe(n) zurückgeführt wird.

9. Reaktormodul (1) nach Anspruch 8, gekennzeichnet durch eine an der dem kontaktrohrfreien Raum (8) zugeordneten breiten Reaktorseite anliegenden Außenkammer (17) mit Öffnungen (18, 19) zu dem das Kontaktrohrbündel (2) umgebenden Reaktorraum sowie mit festen oder regelbaren Durchtrittsöffnungen (20) für das Wärmetauschmittel in der Außenkammer (17).
10. Reaktormodul (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Kontaktrohre des Kontaktrohrbündels (2) in gegeneinander versetzten Reihen angeordnet sind, wobei das Verhältnis des Rohrabstands  $s_q$  quer zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschmittel zum Rohrabstand  $s_l$  längs zur Anströmrichtung durch das Wärmetauschmittel vorzugsweise größer oder gleich als  $2 \cdot \sqrt{3}$ , besonders bevorzugt gleich  $2 \cdot \sqrt{3}$  ist.
11. Reaktor, aufgebaut aus zwei oder mehreren, in Richtung der Kontaktrohr längsachsen, an den schmalen Seitenflächen aneinandergereihten Reaktormodulen (1) nach einem der Ansprüche 7 bis 10.
12. Verwendung eines Reaktormoduls nach einem der Ansprüche 1 bis 10 oder eines Reaktors nach Anspruch 11 zur Durchführung von Oxidationsreaktionen, insbesondere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid, Glyoxal, (Meth)acrolein oder (Meth)acrylsäure.

BASF Aktiengesellschaft

15. Dezember 1998

NAE19980463 IB/HK/b1004

5

### Zusammenfassung

10 Es wird ein Reaktormodul (1) mit einem Kontaktrohrbündel (2) vorgeschlagen, durch dessen die Kontaktrohre umgebenden Raum ein Wärmetauschkreislauf geleitet wird mit Zu- bzw. Abführleitungen (3, 4) an beiden Enden des Reaktormoduls, wobei das Reaktormodul (1) einen rechteckigen Querschnitt aufweist. Reaktormodule (1) können in beliebiger Anzahl aneinander gereiht und somit zu Reaktoren gewünschter Kapazität zusammengefügt werden.

15

(Figur 1)

Figure 1

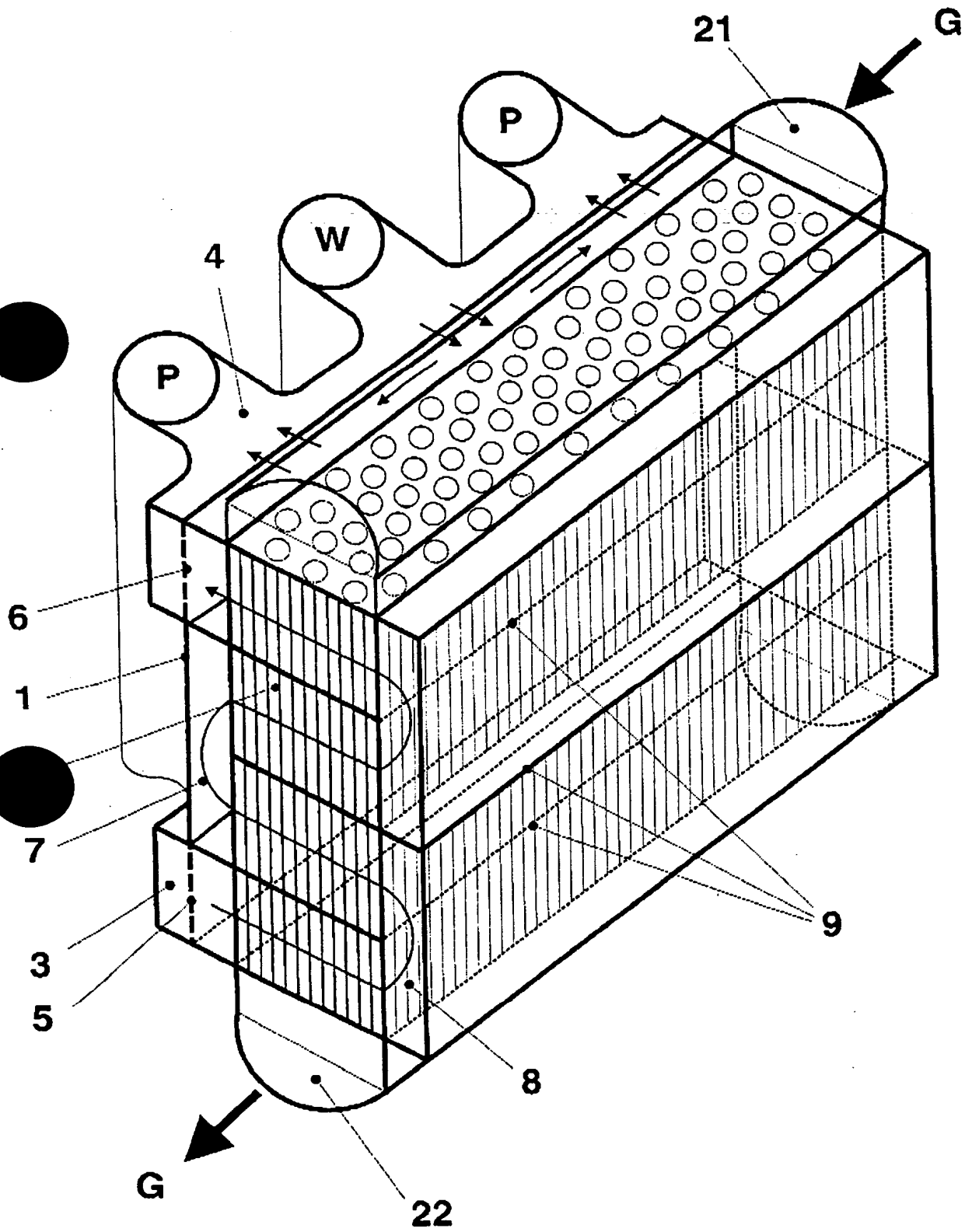
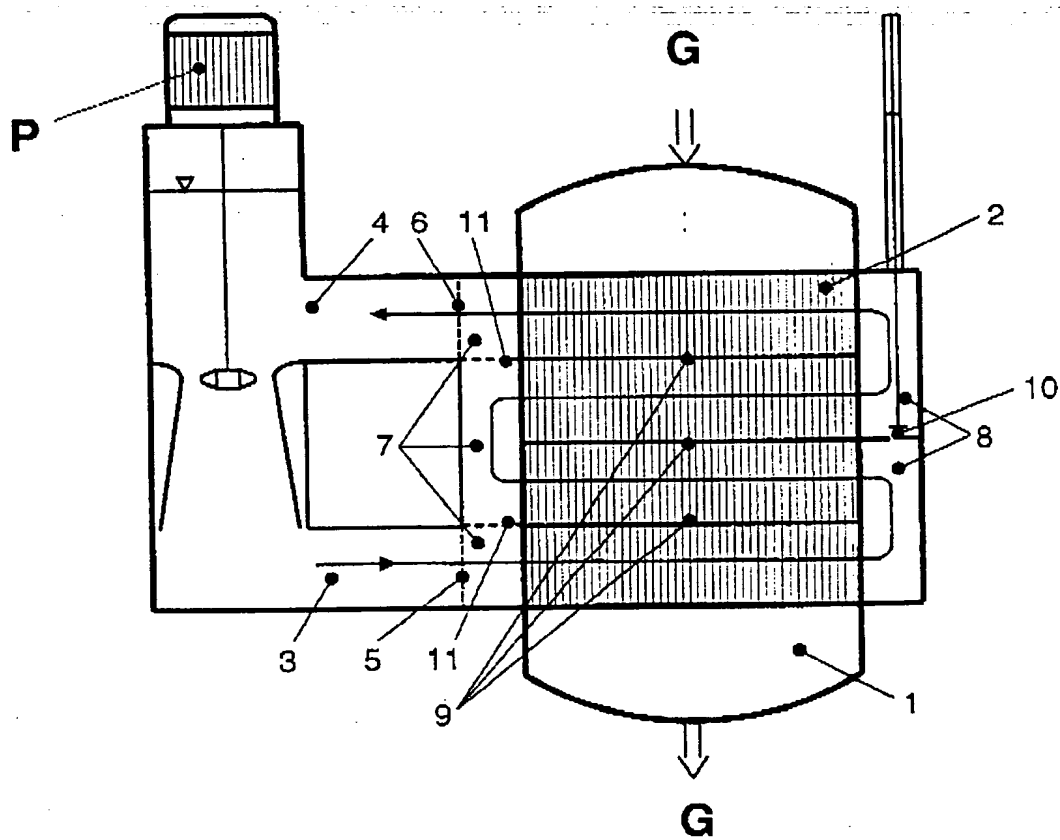
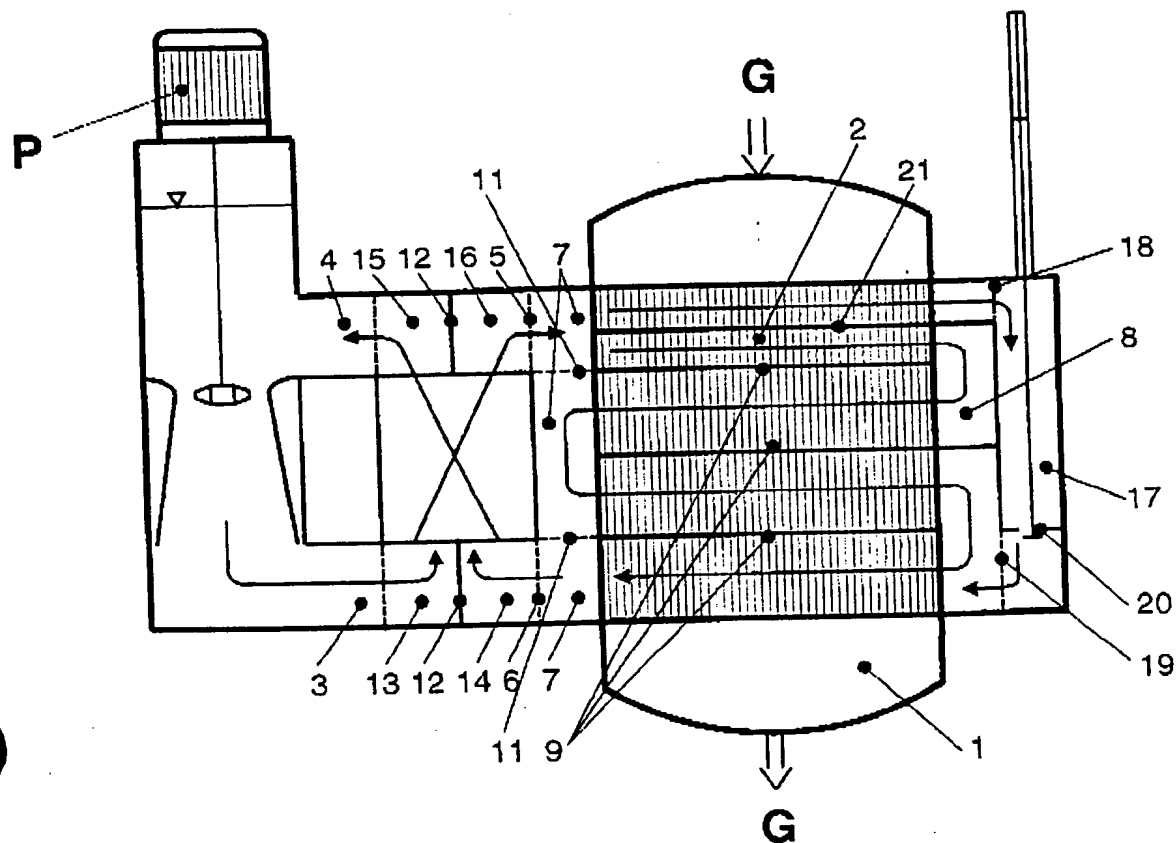


Figure 2

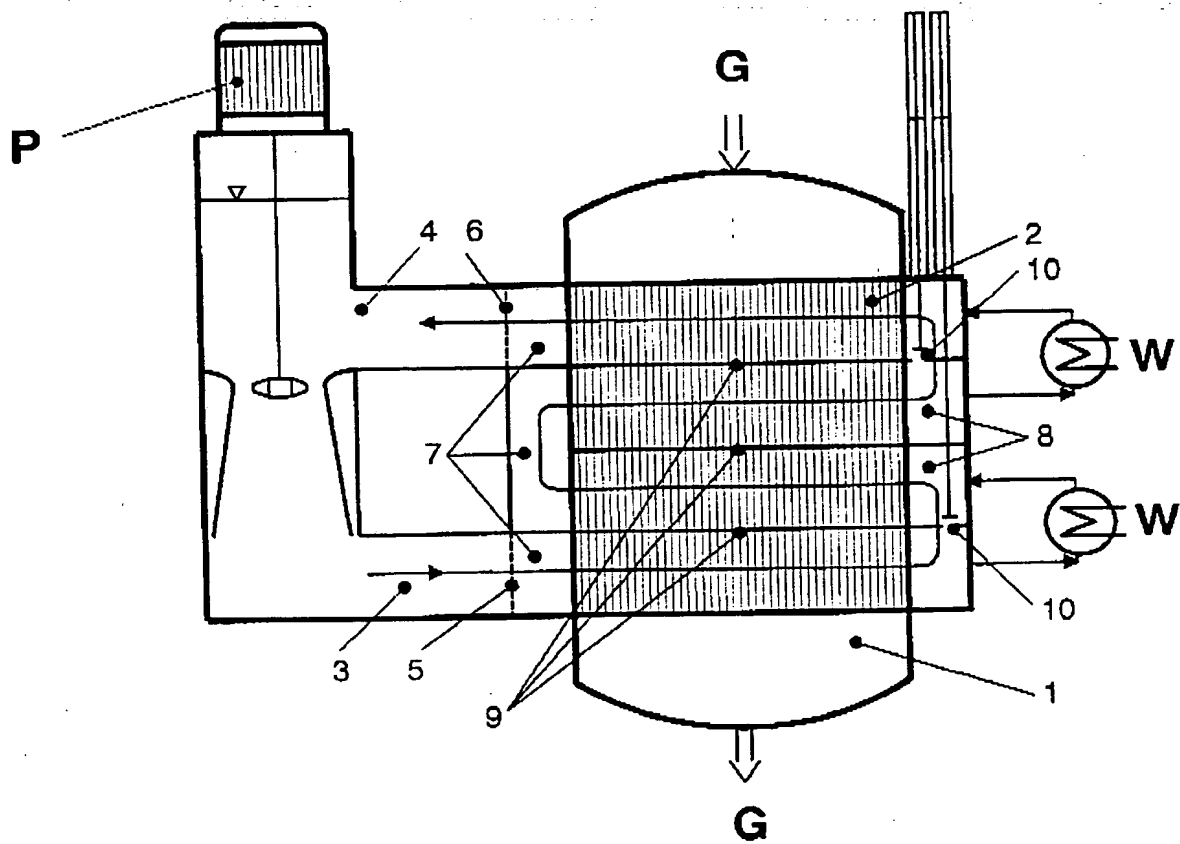


Figur 3





Figur 4



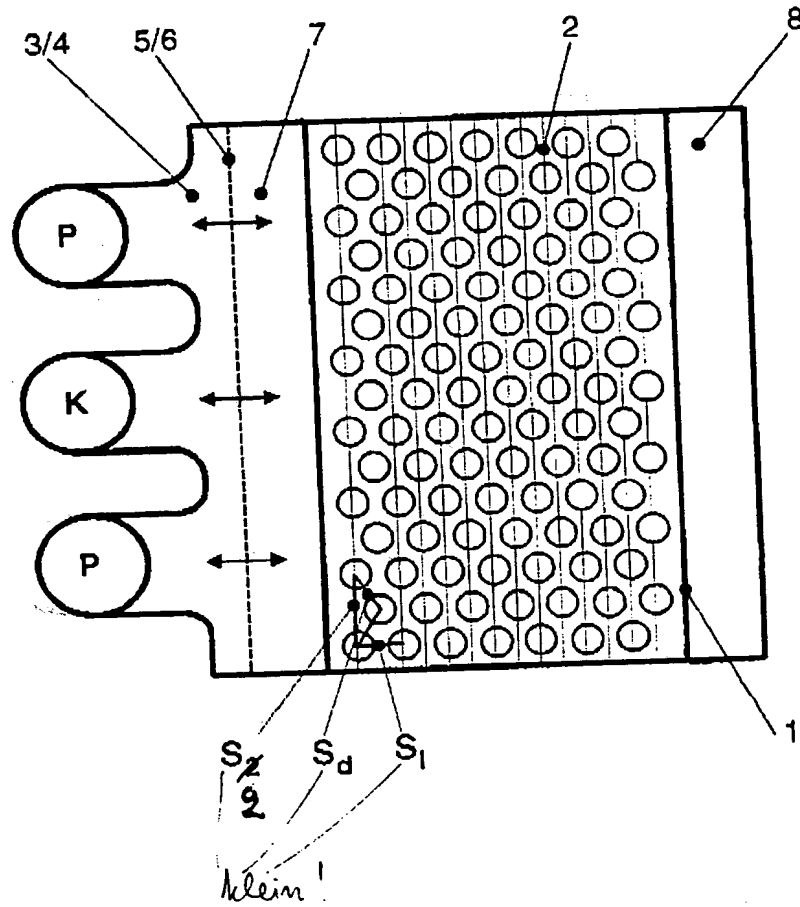
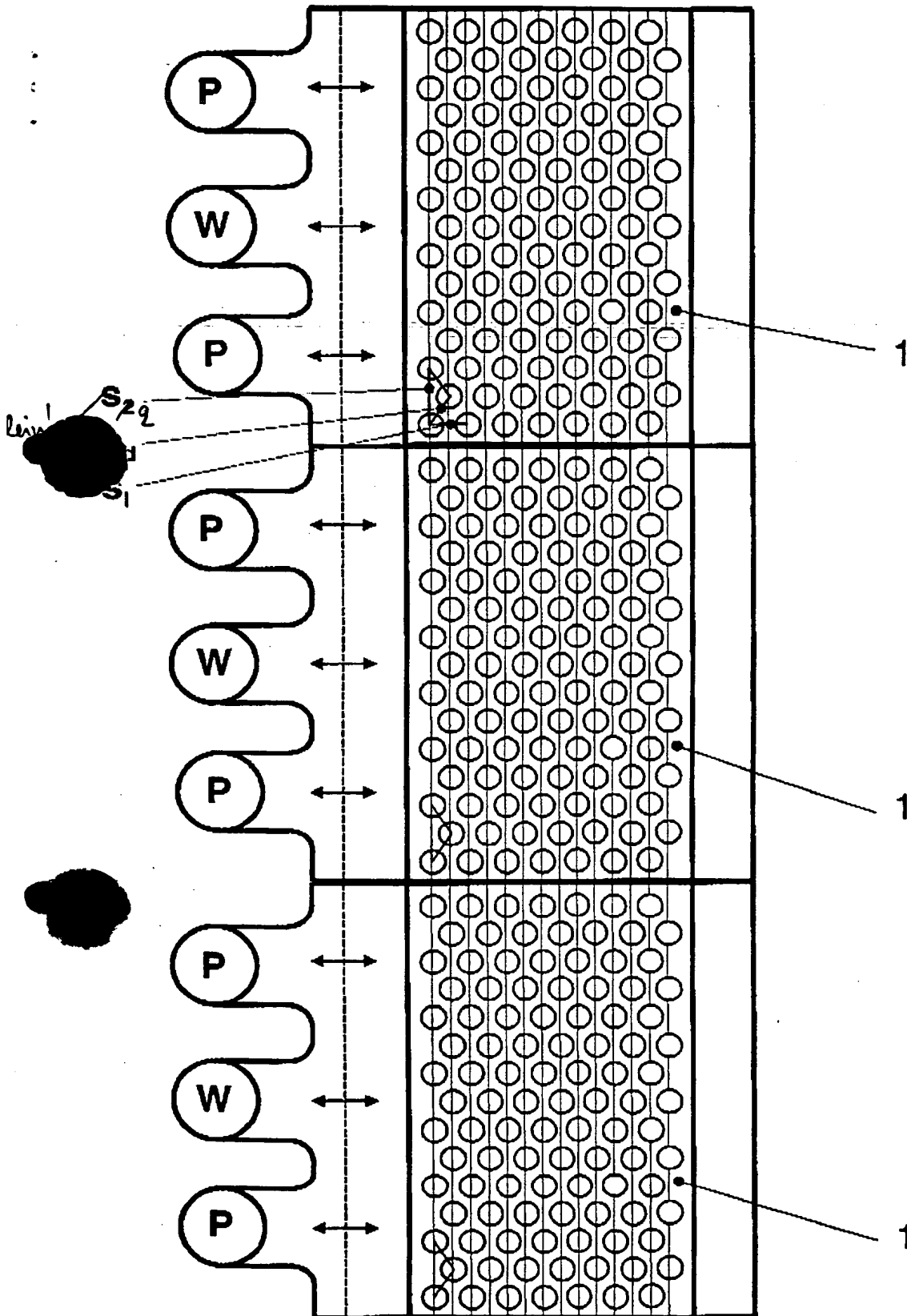


FIG. 6





•  
2  
•